

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-021422

(43)Date of publication of application : 21.01.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 10-199545

(71)Applicant : TOSHIBA CORP

(22)Date of filing : 30.06.1998

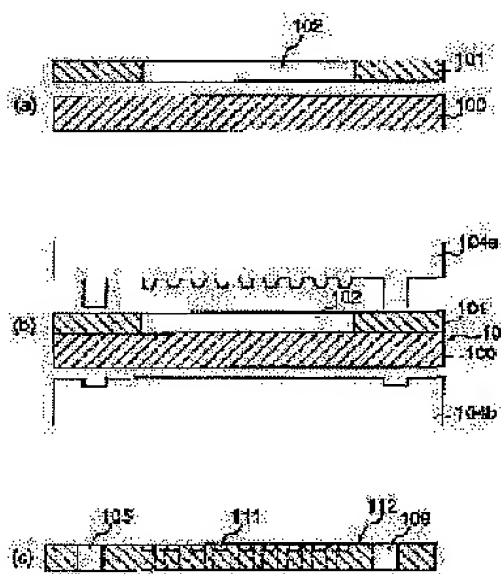
(72)Inventor : SHIMOTORI SOICHIRO  
OMA ATSUSHI

(54) MANUFACTURE OF SEPARATOR FOR FUEL CELL, AND THE SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method of manufacturing a separator for solid high molecular fuel cell, capable of showing the sufficient airtightness for restraining gas leakage and the sufficient mechanical strength by using a flexible graphite sheet as a separator forming material, and to provide a separator for solid high molecular fuel cell and a solid high molecular fuel cell.

**SOLUTION:** In this method of manufacturing a separator, having a passage for flow guide in a region opposite to a power generating area of a unit cell in at least one surface of a flexible graphite sheet and having a through-hole for supplying and discharging the fluid to the described passage in a peripheral area of the sheet, and a first sheet 100 formed of the flexible graphite sheet and a second sheet 101 formed of the flexible graphite sheet, of which part corresponding to the passage is eliminated, are laminated so as to form a layered sheet 103, and this layered sheet 103 is pressed so as to form the passage and the through-hole, and bulk density in the peripheral region is heightened.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-21422

(P2000-21422A)

(43) 公開日 平成12年1月21日 (2000.1.21)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 0 1 M 8/02

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

テームコード\* (参考)

B 5 H 0 2 6

R

S

審査請求 有 請求項の数 6 F D (全 18 頁)

(21) 出願番号

特願平10-199545

(22) 出願日

平成10年6月30日 (1998.6.30)

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

(72) 発明者 霜島 宗一郎

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株

式会社東芝研究開発センター内

(72) 発明者 大間 敦史

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株

式会社東芝研究開発センター内

(74) 代理人 100058479

弁理士 鈴江 武彦 (外6名)

Fターム(参考) 5H026 AA06 BB00 BB02 CC03 CC08

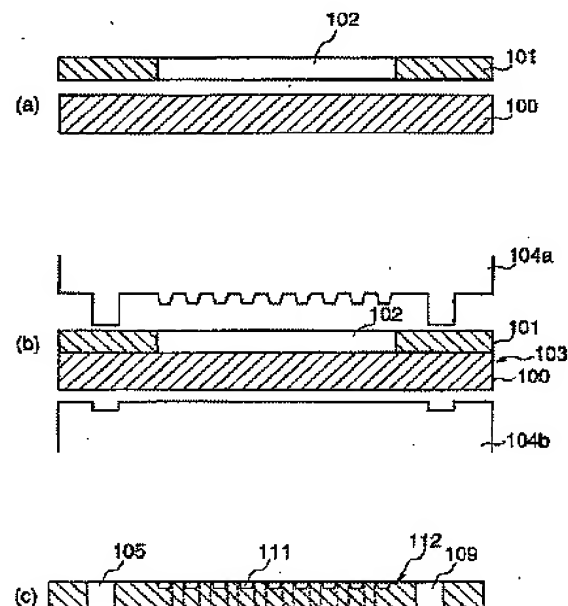
CX04 CX06 EE06

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータの製造方法及び燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】セパレータ形成材料として可撓性黒鉛シートを用い、しかもガスリークを抑制できる十分な気密性と十分な機械的強度性を発揮できる固体高分子型燃料電池用セパレータの製造方法、固体高分子型燃料電池用セパレータ及び固体高分子型燃料電池を提供する。

【解決手段】可撓性黒鉛シートの少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路を有し、上記シートの周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔を有するセパレータを製造するに当たって、可撓性黒鉛シートからなる第1のシート100と、流路に対応する部分が除去された可撓性黒鉛シートからなる第2のシート101とを積層し、この積層シート103にプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートの少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路を有し、上記シートの周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔を有するセパレータを製造するに当たって、可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシートと、前記流路に対応する部分が除去された可撓性黒鉛シートからなる第 2 のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしたことを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 2】前記貫通孔の周囲を含む前記積層シートの周縁部にシール材装着用の溝を形成することを特徴とする請求項 1 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 3】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、可撓性黒鉛シートを筒状にして前記貫通孔の周壁内側に装着されたリーク防止筒とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、少なくとも前記貫通孔の周壁にコーティングされたリーク防止薄膜層とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部に形成された段差部分と、この段差部分に添設された段差吸収手段とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】前記貫通孔の周囲を含む前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部にシール材装着用の溝を備えていることを特徴とする請求項 3、4、5 の何れか 1 項に記載の燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用セパレータの製造方法及び燃料電池用セパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】近年、高効率のエネルギー変換装置として、燃料電池が注目を集めている。燃料電池は、用いる電解質の種類により、例えばアルカリ性水溶液型、リン酸型、固体高分子型等の低温動作燃料電池と、熔融炭酸塩型、固体酸化物電解質型等の高温動作燃料電池とに大別される。

【0003】これらの燃料電池、例えば電解質として水素イオン伝導性を有する高分子電解質膜を用いる固体高分子型燃料電池は、加圧容器を必要とせずにコンパクトで高出力が得られること、優れた機動性が得られ、かつ簡略なシステムで運転が可能であることなどの理由から、宇宙用、移動電源用、離島用、定置用などとして注目されている。

【0004】このような固体高分子型燃料電池（以後、PEFC と略記する）において、高分子電解質膜としては、パーフルオロカーボンスルホン酸膜（例えばナフィオン：商品名、デュボン社製）などが用いられる。PEFC では、上述した高分子電解質膜を、白金などの触媒を担持した一对の多孔質電極、すなわち燃料極と酸化剤極とで挟持した膜電極複合体が基本構成となる、高分子電解質膜および多孔質電極はそれぞれシート状に形成され、その厚みはそれぞれ 1 mm 以下である。

【0005】高分子電解質膜及び多孔質電極の形状は通常矩形である。電極の面積は発電に必要な電流値及び単位面積当たりの電流値、すなわち電流密度により決まり、通常は  $100 \text{ cm}^2$  以上、すなわち一辺が  $10 \text{ cm}$  以上の大きさである。高分子電解質膜は、燃料極と酸化剤極とに供給されるガスの混合を防ぐ役割もあるため、その面積は電極の面積より大に設定される。

【0006】図 16 には従来の PEFC 1 が局部的に示されている。

【0007】PEFC 1 は、通常、単位セル 2 を複数積層した構成となっている。各単位セル 2 は、図 17 に示すように、高分子電解質膜 11 を備えている。この高分子電解質膜 11 の両面には高分子電解質膜よりも小さい面積に形成された燃料極 12 と酸化剤極 13 とが配置されている。そして、燃料極 12 及び酸化剤極 13 の周囲にはガスシール用のパッキング 14、15 が配置されている。

【0008】燃料極 12 の図中上面側には、燃料極 12 への燃料ガスの供給機能と集電機能とを発揮するアノード側セパレータ 16 が配置されている。このアノード側セパレータ 16 の燃料極 12 との接触面、つまり発電領域に対応する面には、燃料ガス流路となる案内溝 17 が複数形成されている。

【0009】同様に、酸化剤極 13 の図中下面側には、酸化剤極 13 への酸化剤ガスの供給機能と集電機能とを

発揮するカソード側セパレータ 18 が配置されている。このカソード側セパレータ 18 の酸化剤極 13 との接触面、つまり発電領域に対応する面には、酸化剤ガス流路となる案内溝 19 が複数形成されている。

【0010】一方、アノード側セパレータ 16 の図中上面側には加湿水透過板 20 が配置されており、この加湿水透過板 20 の周囲にはシール材で形成されたパッキング 21 が配置されている。そして、加湿水透過板 20 の図中上面には冷却用セパレータ 22 が配置されている。この冷却用セパレータ 22 の加湿水透過板 20 に接触する面には、冷却水を案内するための案内溝 23 が複数形成されている。

【0011】冷却用セパレータ 22、パッキング 21、アノード側セパレータ 16、パッキング 14、高分子電解質膜 11、パッキング 15 及びカソード側セパレータ 18 の周辺部には、図 16 に示す端板 24 に形成されているものと同様に、燃料ガス供給孔 25、燃料ガス排出孔 26、酸化剤ガス供給孔 27、酸化剤ガス排出孔 28、冷却水供給孔 29、冷却水排出孔 30 が貫通状態に、かつそれぞれ積層方向に通じる関係に形成されている。そして、アノード側セパレータ 16 に設けられた各案内溝 17 は連絡用流路を介して燃料ガス供給孔 25 及び燃料ガス排出孔 26 に通じ、カソード側セパレータ 18 に設けられ各案内溝 19 は連絡用流路を介して酸化剤ガス供給孔 27 及び酸化剤ガス排出孔 28 に通じ、また冷却用セパレータ 22 に設けられた各案内溝 23 は連絡用流路を介して冷却水供給孔 29 及び冷却水排出孔 30 に通じている。この構成から判るように、上述した各貫通孔と連絡用流路とによって内部マニホールドが形成されている。

【0012】このように構成された PEFC1 では、燃料ガス供給孔 25 を介して燃料ガスが供給されると、供給された燃料ガスの一部が各単位セル 2 内のアノード側セパレータ 16 に設けられた各案内溝 17 を流れる。そして、一部が燃料極 12 に拡散して発電に供され、残りが燃料ガス排出孔 26 を介して回収される。また、酸化剤ガス供給孔 27 を介して酸化剤ガスが供給されると、供給された酸化剤ガスの一部が各単位セル 2 内のカソード側セパレータ 18 に設けられた各案内溝 19 を流れる。そして、一部が酸化剤極 13 に拡散して発電に供され、残りが酸化剤ガス排出孔 28 を介して回収される。

【0013】一方、冷却水供給孔 29 を介して冷却水が供給されると、供給された冷却水の一部が各単位セル 2 内の冷却用セパレータ 22 に設けられた各案内溝 23 を流れる。そして、一部が加湿水透過板 20、アノード側セパレータ 16、燃料極 12 をそれぞれ透過して高分子電解質膜 12 の加湿に供され、残りが冷却用セパレータ 22 を介して吸熱した後に冷却水排出孔 30 を介して回収される。

【0014】このとき、PEFC1 は、図示しないヒー

タ等によって例えば 60℃ から 120℃ の範囲に保持される。単位セル 2 の起電力は 1V 以下であるため、単位セル 2 を複数直列に接続して必要な起電力を得ている。

【0015】ところで、このような PEFC において、単位セル 2 に組み込まれているアノード側セパレータ 16、カソード側セパレータ 18 及び冷却用セパレータ 22 には、導電性が良いこと、加工性に優れていること、気密性があること、さらに大量生産に適していることなどが要求される。

【0016】このようなことから、セパレータの形成材料として、一般にカーボン材を用いることが多い。また、最近では可撓性黒鉛からなる多孔質シートを金型成形加工することによってセパレータを製造する方法も提案されている。

【0017】図 18 には可撓性黒鉛シートを用いてセパレータを製造する従来の製造方法が工程順に示されている。

【0018】まず、図 18 (a) に示すように、嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シート 31 を用意し、これらを積層する。次に、図 18 (b) に示すように、積層シート 32 に対し、金型 33a、33b を用いて、前述した燃料ガス供給孔 25、燃料ガス排出孔 26、酸化剤ガス供給孔 27、酸化剤ガス排出孔 28、冷却水供給孔 29、冷却水排出孔 30 および案内溝をプレス成形加工し、図 18 (c) に示すようなセパレータを完成させる。

【0019】図 19 (a) には図 18 に示す方法で製造されたセパレータ、ここにはカソード側セパレータ 18 が示されている。このカソード側セパレータ 18 では、複数条の案内溝 19 が酸化剤極に接触する面部に蛇行するように設けられ、一端側が酸化剤ガス供給孔 27 に通じ、他端側が酸化剤ガス排出孔 28 に通じている。

【0020】セパレータの材料として用いられる可撓性黒鉛シート 31 は、膨張黒鉛とも呼ばれ、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した層状の構造となっている。このため、ガス透過量は、平面と垂直な方向、つまり厚み方向には少なく、平面と平行な方向に多いという特徴がある。平面と平行な方向のガス透過量は、材料の嵩密度に反比例し、嵩密度が大きいほど少ない。

【0021】従来のセパレータの場合、原料の多孔質シートの嵩密度は約  $0.9 \text{ g/cm}^3$  とほぼ均一である。これを積層してなる積層シート 32 にプレス成形加工を施して形成されたセパレータ、例えば図 19 に示すカソード側セパレータ 18 では、案内溝 19 の形成されている部分の残肉部 34 の嵩密度が約  $1.6 \text{ g/cm}^3$  と高く、この残肉部 34 でのガス透過量は少ない。しかし、それ以外の部分は嵩密度が約  $1.0 \text{ g/cm}^3$  程度と小さく、ガス透過量が多い。

【0022】このように、従来のセパレータにあっては、特に気密性が要求されるガス・冷却水の供給・排出

孔間および周囲とガス・冷却水の供給・排出孔との間において高い嵩密度が得られないので、ガス透過量、つまりガスリーク量が多いという問題があった。

【0023】また、周囲とガス・冷却水の供給・排出孔との間の嵩密度を高くできないので、その部分の機械的な強度を高くすることができないという問題もあった。特に、ガスや冷却水を加圧して燃料電池を運転する際には、ガス・冷却水の供給・排出孔の周壁にガス圧力が加わり、大気開放の周囲に向かって、応力が発生する。この部分の嵩密度が低いと、強度も低いので、強度を確保するには周囲とガス・冷却水の供給・排出孔との間の距離を大きくする必要がある。しかし、この部分は反応に寄与しない部分であるため、この部分の距離を大きくすることは、全体の大型化を招くことになる。

【0024】

【発明が解決しようとする課題】上述の如く、可撓性黒鉛シートを用いて製造された従来の燃料電池用セパレータにあっては、周辺部に設けられて各種流体の供給・排出に供される貫通孔の周壁を通してのガスリークが多いばかりか、上記孔の周囲の機械的強度性に劣り、機械的強度を確保しようとすると、全体が大型化するという問題があった。

【0025】そこで本発明は、セパレータ形成材料として可撓性黒鉛シートを用い、しかもガスリークを抑制できる十分な気密性と十分な機械的強度性とを発揮できる燃料電池用セパレータの製造方法及び燃料電池用セパレータを提供することを目的としている。

【0026】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項1に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートの少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路を有し、上記シートの周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔を有するセパレータを製造するに当たって、可撓性黒鉛シートからなる第1のシートと、前記流路に対応する部分が除去された可撓性黒鉛シートからなる第2のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしている。

【0027】なお、前記貫通孔の周囲を含む前記積層シートの周縁部にシール材装着用の溝を形成するようにしてもよい。

【0028】上記目的を達成するために、請求項3に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、可撓性

黒鉛シートを筒状にして前記貫通孔の周壁に装着されたリーク防止筒とを具備してなることを特徴としている。

【0029】上記目的を達成するために、請求項4に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、少なくとも前記貫通孔の内周面にコーティングされたリーク防止薄膜層とを具備してなることを特徴としている。

【0030】上記目的を達成するために、請求項5に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部に形成された段差部分と、この段差部分に添設された段差吸収手段とを具備してなることを特徴としている。

【0031】なお、請求項3、4、5に係るセパレータにおいて、前記貫通孔の周囲を含む前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部にシール材装着用の溝を備えていてもよい。

【0032】請求項1に係る発明では、可撓性黒鉛シートからなる第1のシートと、流路に対応する部分が除去された可撓性黒鉛シートからなる第2のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して流路及び該流路への流体の供給・排出に供される貫通孔を備えたセパレータを形成するようにしているので、プレス成形加工後のセパレータの厚みが従来のものと等しいとすると、第2のシートを積層している分だけ周辺部、つまり上記貫通孔の設けられる領域の嵩密度を高めることができる。このため、貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。同時に貫通孔の周辺部の嵩密度を高くできるので、この周辺部の機械的強度を増加させることができる。

【0033】請求項3に係る発明では、セパレータ本体の周辺領域に形成されて流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔の周壁内側に可撓性黒鉛シートを筒状にしたリーク防止筒を装着しているので、可撓性黒鉛シートが本質的に備えている厚み方向の高いガスリーク阻止機能を有効に利用して貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。

【0034】請求項4に係る発明では、セパレータ本体の周辺領域に形成されて流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔の少なくとも内面にリーク防止薄膜層をコーティングしているので、この場合においても貫通孔

の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。

【0035】一方、請求項5に係る発明では、セパレータ本体の少なくとも一方の面で流路及び貫通孔の周縁部に段差部分を設けている。この段差の形成に際して、流路及び貫通孔が設けられている部分に較べてその周縁部の肉厚が薄くなるように、つまり流路及び貫通孔が設けられている部分に較べてその周縁部のプレス変形量が多くなるようにプレス加工を施すことによって、上記周縁部の嵩密度を大きくできる。したがって、この場合も貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。なお、段差部分に段差吸収手段を添設しているの、段差の存在が燃料電池の積層構成に影響を及ぼすことはない。

【0036】

【発明の実施の形態】以下、図面を参照しながら発明の実施形態を説明する。

【0037】図1には本発明の第1の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここには一例として固体高分子型燃料電池用セパレータの製造方法を工程順に説明するための図が示されている。

【0038】まず、図1(a)に示すように、嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなる第1のシート100を用意する。次に、この第1のシート100の上に嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなる第2のシート101を重ねる。この第2のシート101は、縦横寸法が第1のシート100と等しく、厚みが第1のシート100より所定だけ薄く、かつ単位セルの発電領域、つまり前述した流路(=案内溝)の設けられている領域に対応する部分102が予めプレス加工等で除去されたものとなっている。

【0039】次に、図1(b)に示すように、第1のシート100と第2のシート101とを重ねた積層シート103に対し、金型104a、104bを用いてプレス成形加工を施し、この加工によって図1(c)および図2に示すような燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110および案内溝111を備えたセパレータを完成させる。

【0040】図2には図1に示す方法で製造されたセパレータ、ここにはカソード側セパレータ112が示されている。このカソード側セパレータ112では、複数条の案内溝111が酸化剤極に接触する面部に蛇行するように設けられ、これら案内溝111の一端側が酸化剤ガス供給孔107に通じ、他端側が酸化剤ガス排出孔108に通じている。

【0041】さらに詳しく説明すると、以下の通りである。

【0042】第1及び第2のシート100、101は、膨張天然黒鉛を圧延成形することによって得られる。これらのシート100、101は、低嵩密度で極めて可撓

性に富み、かつ通気率が低く、気密性が高いという特徴を備えている。これらのシートとしては、たとえば日本カーボン社製のニカフィルムを用いることができる。第1のシート100は、長さ200mm、幅200mm、厚み2.14mm、嵩密度0.7である。第2のシート101は、長さ200mm、幅200mm、厚み1.29mm、嵩密度0.7である。第2のシート101は、酸化剤ガス流路に相当する部分102が予め除去されている。

【0043】第1のシート100と第2のシート101とを積層した積層シート103に対して金型104a、104bを用いてプレス成形加工を施し、図2に示すカソード側セパレータ112を得た。

【0044】得られたカソード側セパレータ112は、長さ200mm、幅200mm、厚さ1.5mmである。片方の面の中央部分には酸化剤ガスを案内する案内溝111が、また周辺部分には燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110が設けられている。

【0045】酸化剤ガスを案内する案内溝111は、断面が台形で、深さ0.5mm、下辺1.0mm、上辺1.5mmとなっている。この案内溝111は、連絡溝を介して酸化剤ガス供給孔107及び酸化剤ガス排出孔108に通じている。

【0046】このように、第1のシート100と流路に対応する部分が除去された第2のシート101とを積層し、この積層シート103にプレス成形加工を施して流路を構成する案内溝111及び該案内溝111への流体の供給・排出に供される孔105～110を備えたセパレータを製造するようにしているので、第2のシート101を積層している分だけ周辺部、つまり燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水の供給・排出に供される孔105～110が設けられる部分の嵩密度を高くすることができる。

【0047】すなわち、従来のセパレータは流路を構成している案内溝111の残肉部分だけが嵩密度1.6と高かった。しかし、この例に係る製造方法で製造されたセパレータは、孔105～110が設けられる部分の嵩密度を1.6と高くすることができる。この結果、孔105～110の周壁を通してのガスリークを抑制することができ、また同時に孔105～110の周縁部の機械的強度も向上させることができる。

【0048】効果を確認するために、燃料ガス供給孔105内にガス圧0.3MPaの窒素ガスを導入し、セパレータ左側面(図2)から漏れてくる窒素を水上置換により回収してリーク量を調べた。その結果、従来のセパレータでは、 $1\text{cc}/\text{min}/\text{cm}^2$ の窒素が検出されたが、この例に係る製造方法で製造されたセパレータでは検出量は零であった。

【0049】このように、第1のシート100に予め流路部分を切り落とした第2のシート101を積層し、この積層シート103に対してプレス成形加工を施すことにより、燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110の周囲に高密度の高い部分を形成することができ、この結果、ガスリーク量を減らすことができる。

【0050】図3には本発明の第2の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここにも固体高分子型燃料電池用セパレータの製造方法を工程順に説明するための図が示されている。

【0051】まず、図3(a)に示すように、高密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなるシート200を用意する。

【0052】次に、図3(b)に示すように、シート200に対し、金型201a、201bを用いてプレス成形加工を施し、この加工によって、図3(c)に示すように、後述する燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔210の元となる孔203および案内溝211を備えたセパレータを得る。

【0053】次に、図3(c)に示すように、高密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなるシートを円筒状に巻いたリーク防止筒204を用意し、これらリーク防止筒204を各孔203の周壁内側に、周壁に密着するように装着し、これによって図3(d)及び図4に示すように、リーク防止筒204で覆われた燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔210および案内溝211を備えたセパレータを完成させる。

【0054】図4には図3に示す方法で製造されたセパレータ、ここにもカソード側セパレータ212が示されている。このカソード側セパレータ212では、複数の案内溝211が酸化剤極に接触する面部に蛇行するように設けられ、これら案内溝211の一端側が酸化剤ガス供給孔207に通じ、他端側が酸化剤ガス排出孔208に通じている。

【0055】さらに詳しく説明すると、以下の通りである。

【0056】すなわち、シート200は、長さ200mm、幅200mm、厚み2.14mm、高密度0.7である。このシート200としては日本カーボン社製のニカフィルムを用いることができる。このシート200に対して、金型201a、201bを用いてプレス成形加工を施した。その際、正規の燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔

210よりも幅が1.5mmだけ大きくなるように各孔203を設けた。プレス成形加工後のシート200の厚みは1.5mmである。

【0057】次に、シート200と同じ材質、密度、厚みのシートを用意し、このシートを丸めて長円筒状のリーク防止筒204を製作した。リーク防止筒204は、肉厚が1.5mmで、酸化剤ガス供給孔/排出孔用のものと、燃料ガス/冷却水の供給孔/排出孔用のものと2種類である。その外形寸法は、プレス成形加工で形成された孔203の大きさとそれぞれ同じである。

【0058】プレス成形加工されたシート200の各孔203にリーク防止筒204を装着して接着剤で固定し、図4に示すようなカソード側セパレータ212を得た。

【0059】得られたカソード側セパレータ212は、長さ200mm、幅200mm、厚さ1.5mmである。片方の面の中央部分には酸化剤ガスを案内する案内溝211が、また周辺部分には燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔210が設けられている。酸化剤ガスを案内する案内溝211は、断面が台形で、深さ0.5mm、下辺1.0mm、上辺1.5mmである。この案内溝211は、連絡溝によって酸化剤ガス供給孔207及び酸化剤ガス排出孔208に通じている。

【0060】このようにして製造されたカソード側セパレータについて、燃料ガス供給孔205内にガス圧0.3MPaの窒素ガスを導入し、セパレータ左側面(図4)から漏れてくる窒素を水上置換により回収してリーク量を調べた。その結果、従来のセパレータでは、 $1\text{ cc/min/cm}^2$ の窒素が検出されたが、この例に係る製造方法で製造されたセパレータでは検出量は零であった。

【0061】このように、燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔210の周壁を構成するように、可撓性黒鉛シートを筒状に巻いたリーク防止筒204を装着しているため、各孔205~210の周壁とリーク防止筒210を構成しているシートの層とを平行させることができ、この結果、ガスリークの量を減らすことができる。

【0062】図5(a)には本発明の第3の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここには例えば固体高分子型燃料電池に組み込まれるカソード側セパレータ312の平面図が示されており、図5(b)には(a)におけるC-C線に沿って切断し、矢印方向に見た図が示されている。

【0063】なお、この図では図4と同一機能部分が同一符号で示されている。したがって、重複する部分の詳しい説明は省略する。

10

20

30

40

50



【0064】この例に係るセパレータは、基本的には嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなるシートにプレス成形加工を施す従来の製造方法と同じ手法で製造されたものであるが、少なくとも燃料ガス供給孔205、燃料ガス排出孔206、酸化剤ガス供給孔207、酸化剤ガス排出孔208、冷却水供給孔209、冷却水排出孔210の周壁、この例では上記周壁及び流体を案内する流路を除く部分の表面にフッ素樹脂からなるリーク防止薄膜層300をコーティングによって形成したものとなっている。なお、リーク防止薄膜層300の厚みは0.01mm程度である。

【0065】このように、少なくとも燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水の供給・排出に供される孔205～210の周壁にリーク防止薄膜層300を設けることにより、これらの孔の周壁を通してのガスリークの発生を防止することができる。

【0066】図6には本発明の第4の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここには一例として固体高分子型燃料電池用セパレータの製造方法を工程順に説明するための図が示されている。

【0067】まず、図6(a)に示すように、嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなるシート220を用意する。

【0068】次に、図6(b)に示すように、シート220に対し、金型221a、221bを用いてプレス成形加工を施し、この加工によって図6(c)、図6

(d)及び図7に示すような燃料ガス供給孔231、燃料ガス排出孔232、酸化剤ガス供給孔233、酸化剤ガス排出孔234、冷却水供給孔235、冷却水排出孔236および案内溝237を備えたセパレータを完成させる。

【0069】図7には図6に示す方法で製造されたセパレータ、ここにはカソード側セパレータ238が示されている。このカソード側セパレータ238では、複数条の案内溝237が酸化剤極に接触する面部に蛇行するように設けられ、これら案内溝237の一端側が酸化剤ガス供給233に通じ、他端側が酸化剤ガス排出孔234に通じている。

【0070】ここで、図6に示す製造方法では、図6(b)に示すように、金型221bのプレス面で、酸化剤ガスの案内路237が形成される領域の周辺部分に相当する部分239を金型221a側に突出させたもの、つまり段差240を設けている。

【0071】この金型構成から判るように、この製造方法では、段差240を設けることによって、案内路237が形成される領域より外側に位置する領域のプレス変形量を大きくし、この領域の嵩密度を大きくしている。したがって、この製造方法で製造されたセパレータ238は、図6(c)、図6(d)及び図7(b)に示すように、セパレータ238の周辺部、具体的には案内路2

37が形成されている領域より外側に位置する部分241が薄肉となる。このような形状は、積層体を構成する上で不向きである。そこで、この例では部分241に段差吸収シート242を添設して段差をなくしているのである。なお、段差吸収シート242は、例えばカソード側セパレータ238に添設されるものを例にとると、図8に示すように、酸化剤ガスを案内する案内路237が形成されている領域243が除去され、その周辺部に燃料ガス供給孔231、燃料ガス排出孔232、酸化剤ガス供給孔233、酸化剤ガス排出孔234、冷却水供給孔235、冷却水排出孔236を配置したものとなっている。

【0072】さらに詳しく説明すると、以下の通りである。

【0073】シート220は、長さ200mm、幅200mm、厚み2.14mm、嵩密度0.7である。このシート220としては、日本カーボン社製のニカフィルムを用いることができる。このシート220に対して金型221a、221bを用いてプレス成形加工を施し、図7(a)に示すカソード側セパレータの本体を得た。このセパレータ本体は、長さ200mm、幅200mm、厚さ1.5mmである。平面の中央部部分には酸化剤ガスを供給する案内路237が、周辺部分には燃料ガス供給孔231、燃料ガス排出孔232、酸化剤ガス供給孔233、酸化剤ガス排出孔234、冷却水供給孔235、冷却水排出孔236が設けられている。酸化剤ガスを流す案内路237は、断面が台形となっていて、深さ0.5mm、下辺1.0mm、上辺1.5mmである。この案内路237は連絡溝によって酸化剤ガス供給孔233及び酸化剤ガス排出口234に通じている。

【0074】一方、金型221bのプレス面で部分239は、金型221a側に0.5mm突出する段差構造に形成されている。この段差を解消するための段差吸収シート242を製作した。

【0075】段差吸収シート242の材料は、炭素系やテフロン系などの繊維シート、薄いステンレス鋼板など、可撓性黒鉛シートに較べて材料強度が高く、なるべく薄いものが好ましい。この例においては、厚さ0.4mmのテフロン繊維シートを用いて、図8に示す形状のものを製作し、図6(d)及び図7(b)に示すように、部分241に添設した。なお、段差吸収シート242を添設する際に、反応ガスまたは冷却水を供給・排出する貫通孔の部分の周囲をシールする手段として、上記シートを添設するセパレータ本体にシール用接着剤で接着するなどの方法が考えられる。また、段差吸収シート242の外形寸法、発電に寄与する部分の寸法、及び反応ガスまたは冷却水を供給・排出する貫通孔の部分の寸法は、セパレータのそれらと一致していてもよいし、シートの外形寸法をセパレータの外形寸法より小さくしてシール用接着材の流れ込むスペースを確保したり、逆に



部分的にセパレータの外形寸法よりも大きくし、電圧測定端子として用いてもよい。

【0076】こうして得られたセパレータは、金型の段差により、酸化剤ガスの案内路237を除いた周囲部分に相当する部分に段差が形成され、上記周囲部分の厚みが例えば1.0mmと薄くなる。これにより、上記周囲部分の嵩密度を例えば1.6と高くすることができ、セパレータ本体の横方向のガスリークを抑えることができる。

【0077】効果を確認するために、従来のセパレータとこの例に係るセパレータの燃料ガス供給孔をそれぞれガス圧0.3MPaの窒素ガスで加圧し、セパレータ右側面から漏れてくる窒素を水上置換により回収してリーク量を調べた。その結果、従来のセパレータでは、1cc/min/cm<sup>2</sup>の窒素が検出されたが、この例に係るセパレータでは検出量は零であった。

【0078】図9には本発明の第5の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここには一例として固体高分子型燃料電池用セパレータの製造方法を工程順に説明するための図が示されている。

【0079】上述した例では、金型に段差を設けてセパレータ周辺部の嵩密度を高めているがこの例では次のようにして周辺部の嵩密度を高めている。なお、この図では、図6乃至図8と同一機能部分が同一符号で示されている。

【0080】まず、図9(a)に示すように、嵩密度のほぼ均一な複数の可撓性黒鉛シートを積層してなるシート220と、図8に示すように形成された段差吸収シート242を用意し、これらを重ねる。

【0081】次に、図9(b)に示すように、シート220と段差吸収シート242との積層物に対して、段差を備えていない金型244a、244bを用いてプレス成形加工を施し、この加工によって図9(c)に示すように、周辺部に段差吸収シート242が一体に埋め込まれたセパレータ238を完成させる。

【0082】このような構成されたセパレータ238は、周辺部が段差吸収シート242の厚み分だけ余分にプレスされるので、周辺部の嵩密度を十分に高めることができる。

【0083】なお、この製法ではシート220と段差吸収シート242との積層物にプレス加工を施すので、段差吸収シート242として例えばテフロンメッシュを用いると、このシートが多孔質のシート220に食い込み、接着剤を用いなくても一体化できるといった効果がある。

【0084】なお、上記例ではガスの案内路が形成される面とは反対の面に段差吸収シートを埋め込むようにしているが、ガスの案内路が形成される面側に段差吸収シートを埋め込む、つまり添設しても同様の効果を得ることができる。

【0085】図10には本発明の第6の実施形態に係る燃料電池用セパレータ、ここには一例として固体高分子型燃料電池用セパレータが示されている。

【0086】この例では、図6に示す製造方法で製作されたカソード側セパレータ238と冷却用セパレータ250とを共通の段差吸収シート251を介して接着し、一体化した複合セパレータの構成としている。

【0087】カソード側セパレータ238は、図6に示す金型に段差を付けてプレス成形する方法で製作されたものである。また、冷却用セパレータ250も同様の方法で制作されたものであるが、案内路252の配置がカソード側セパレータ238とは異なっている。

【0088】大きさは、カソード側セパレータ238、冷却用セパレータ250ともに長さ200mm、幅200mm、厚さ1.5mmである。冷却用セパレータ250の表面、つまり図示しない加湿水透過板に接触する面の中央部分には冷却水を案内する案内路252が形成されており、周辺部分には燃料ガス供給孔231、燃料ガス排出孔232、酸化剤ガス供給孔233、酸化剤ガス排出孔234、冷却水供給孔235、冷却水排出孔236が設けられている。冷却水を案内する案内路252は断面が台形となっていて、深さ0.5mm、下辺1.0mm、上辺1.5mmである。案内路252は、連絡溝によって冷却水供給235及び冷却水排出口孔236に接続されている。

【0089】カソード側セパレータ238及び冷却用セパレータ250の周辺部に設けられた段差は0.5mmであり、これらを吸収するために共通の段差吸収シートが251添設されている。段差吸収シート251は、テフロン繊維シートからなり、厚みは0.8mmである。これらのセパレータ及び段差吸収シートは接着剤を介して一体化される。

【0090】このようにセパレータの周辺部に段差を設けることで、周囲部分の嵩密度が高まり、横方向のガスリークを抑えることができるとともに複数のセパレータの段差吸収シートを共通にして一体化することで、リークの生じにくい複合セパレータを得ることができる。

【0091】なお、上記例では複合セパレータとして、カソード側／冷却用セパレータの組を構成しているが、カソード側／アノード側セパレータ、アノード側／冷却用セパレータの組合せでもよい。

【0092】図11(a)には本発明の第7の実施形態に係るセパレータ、ここにも例としてカソード側セパレータ412の平面図が示されており、図11(b)には(a)におけるD-D線に沿って切断し、矢印方向に見た図が示されている。

【0093】なお、この図では図2と同一機能部分が同一符号で示されている。したがって、重複する部分の詳しい説明は省略する。

【0094】この例に係るカソード側セパレータ412

は、図1に示す製造方法と同じ方法で製造されたものであるが、図2に示す流路部分、つまり案内溝111の設けられている領域の周囲及び燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110の周囲にシール用の溝400を設けたものとなっている。

【0095】溝400は、プレス成形加工時に一緒に形成されており、寸法は案内溝111と同じで、例えば深さ0.5mm、下辺1.0mm、上辺1.5mmである。

【0096】図11ではカソード側セパレータ412だけを示しているが、図12に示すように、このカソード側セパレータ412と組をなして単位セルを構成するアノード側セパレータ413、冷却用セパレータ414も同じようにシール用の溝400を備えたものとなっている。

【0097】すなわち、これらアノード側セパレータ413、冷却用セパレータ414も図1に示す製造方法と同じ方法で製造されており、流体を案内する案内溝111の設けられている領域の周囲及び燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110の周囲にシール用の溝400を備えたものとなっている。

【0098】図12において、415は高分子電解質膜を示し、416は燃料極を示し、417は酸化剤極を示している。また、418、419はフッ素ゴムで形成されたパッキングを示し、420は加湿水透過板を示し、421はフッ素ゴムで形成されたパッキングを示している。

【0099】ここで、パッキング418、419、421の各セパレータに対向する面で、シール用の溝400に対向する面には突起422が一体に突設されている。この例の場合、突起422は、高さが0.6mm、幅が0.8mmに設定されている。突起422は、積層後にシール溝400に収納され、かつ積層方向に縮んで復元力を発生するように、高さがシール溝400の深さより深く、幅がシール溝400の下辺幅より小さい方が好ましい。

【0100】このように構成された各要素を積層して図13に示す単位セルを組み立てた。この単位セルの燃料ガス/酸化剤ガス/冷却水通路を0.3MPaの窒素ガスで加圧し、そのときに単位セルの側面から漏れ出した窒素の量を水上置換で測定した。その結果、検出量は零であった。一方、図18に示した従来の製造方法で製造され、しかも突起422及びシール溝400を備えていない単位セルについて同様の測定を行ったところ、0.9cc/min/cm<sup>2</sup>の窒素が検出された。

【0101】なお、図1で説明した製造方法と図11乃

至図13に示す構成を採用すると、セパレータの周辺流域でのガスリークを防止できるとともに周辺領域の機械的強度を向上させることができるので、セパレータの厚みを薄くすることができ、その結果、単位セルの積層方向の厚みを薄くすることができる。なお、図6乃至図10に示す例においても案内路の周縁部及び貫通孔の周縁部にシール材を介挿させるようにしてもよい。

【0102】図14には本発明のさらに別の実施形態に係る固体高分子型燃料電池における単位セルの分解側面図が示されている。なお、この図では図12と同一機能部分が同一符号で示されている。したがって、重複する部分の詳しい説明は省略する。

【0103】この例に係る固体高分子型燃料電池では、アノード側セパレータ413とパッキング418との間、カソード側セパレータ412とパッキング419との間、及び冷却用セパレータ414とパッキング421との間に補強部材430a、430b、430cをそれぞれ介在させたものとなっている。

【0104】すなわち、この例に係る固体高分子型燃料電池において、カソード側セパレータ412、アノード側セパレータ413、冷却用セパレータ414は、図1に示す製造方法と同じ方法で製造されており、流体を案内する案内溝111の設けられている領域の周囲及び燃料ガス供給孔105、図示しない燃料ガス排出孔、図示しない酸化剤ガス供給孔、図示しない酸化剤ガス排出孔、冷却水供給孔109、図示しない冷却水排出孔の周囲に図11から図13に示した例と同様にシール用の溝400を備えたものとなっている。

【0105】一方、補強部材430a、430b、430cは、可撓性黒鉛シートに比べて強度の大きい炭素系や四フッ化エチレン系などの薄い繊維シート、薄いステンレス板など導電性材料あるいは非導電性材料で形成されており、単位セルの発電領域に対応する部分を除去した形状で、かつ流体を通過させるための孔のほかにパッキング418、419、421に設けられている突起422を嵌入させる孔431を備えている。そして、これらの補強部材430a、430b、430cは隣接するセパレータにシール用の接着剤で固定されている。

【0106】なお、セパレータの外形寸法よりも補強部材の外形寸法を小さくしてシール用接着剤の流れ込むスペースを確保したり、逆に部分的にセパレータの外形寸法よりも大きくして電圧測定端子として用いてもよい。

【0107】このように補強部材430a、430b、430cを組み込んだ単位セルを70セル積層した燃料電池スタック（スタック1）と、補強部材を組み込んでいない単位セルを70セル積層した燃料電池スタック（スタック2）を用いて発電試験を実施した。

【0108】燃料ガスとして水素ガスを、酸化剤ガスとして空気を、ガス圧力0.1MPa（常圧）、0.3MPaの2条件で行った。反応ガスの利用率は、定格

10

20

30

40

50

電流密度 ( $i = 0.35 \text{ A/cm}^2$ ) の時に  $U_f = 70\%$ 、 $U_{ox} = 40\%$  となるようにした。

【0109】反応ガス圧力  $0.3 \text{ MPa}$  の試験において、スタック 2 については上記反応ガス利用率では  $0.3 \text{ MPa}$  に加圧することができなかった。スタック 2 の側面にガスリークチェック用の液をかけてリークを調べたところ、4ヶ所のコーナー付近から反応ガスの漏れが顕著に見られた。同様にスタック 1 に関してリークを調べたところ、反応ガスの漏れは見られなかった。

【0110】このように補強部材 430a、430b、430c を組み込むことによって、各セパレータの周辺領域の機械的強度の向上は勿論のこと、単位セル全体の機械的強度の向上を図ることができる。

【0111】なお、図 14 に示す例では、パッキング 419 とカソード側セパレータ 412 との間、パッキング 418 とアノード側セパレータ 413 との間、パッキング 421 と冷却用セパレータ 414 との間に補強部材を介在させているが、必ずしも上記位置に限られるものではなく、図 15 に示すように、アノード側セパレータ 413 とパッキング 421 との間、カソード側セパレータ 412 と冷却用セパレータ 414 との間に補強部材 430d、430e を介在させるようにしてよい。また、図 14 及び図 15 に示す例において、補強部材の厚み分による段差の発生をなくすために、電極や加湿水透過板の厚みを増したり、補強部材に接触する部分の肉厚を薄くしたりする必要があることは勿論である。また、上述した各例では、各セパレータに一つの機能だけを持たせているが、例えばカソード側セパレータと冷却用セパレータとを一体化することもできる。この場合にはセパレータ本体の両面に案内溝が形成されることになる。なお、加湿水透過板は必ずしも必要とするものではない。

【0112】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、セパレータ形成材料として可撓性黒鉛シートを用い、しかもガスリークを抑制できる十分な気密性と十分な機械的強度性を発揮させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の第 1 の実施形態に係るセパレータの製造方法を説明するための図

【図 2】(a) は同方法で製造されたカソード側セパレータの平面図で (b) は (a) における A-A 線切断矢視図

【図 3】本発明の第 2 の実施形態に係るセパレータの製造方法を説明するための図

【図 4】(a) は同方法で製造されたカソード側セパレータの平面図で、(b) は (a) における B-B 線切断矢視図

【図 5】(a) は本発明の第 3 の実施形態に係るセパレータの平面図で、(b) は (a) における C-C 線切断矢視図

【図 6】本発明の第 4 の実施形態に係るセパレータの製造方法を説明するための図

【図 7】(a) は同実施形態に係るセパレータの平面図

で、(b) は (a) における F-F 線切断矢視図

【図 8】(a) は同セパレータに組み込まれる段差吸収シートの平面図で、(b) は (a) における G-G 線切断矢視図

【図 9】本発明の第 5 の実施形態に係るセパレータの製造方法を説明するための図

【図 10】(a) は本発明の第 6 の実施形態に係るセパレータの平面図で、(b) は (a) における H-H 線切断矢視図で、(c) は同セパレータの下面図

【図 11】(a) は本発明の第 7 の実施形態に係るセパレータの平面図で、(b) は (a) における D-D 線切断矢視図

【図 12】図 11 に示すセパレータを組み込んだ単位セルの分解断面図

【図 13】図 11 に示すセパレータを組み込んだ単位セルの断面図

【図 14】本発明を適用した固体高分子型燃料電池における単位セルの分解断面図

【図 15】本発明を適用した他の固体高分子型燃料電池における単位セルの分解断面図

【図 16】従来の固体高分子型燃料電池を局部的に示す斜視図

【図 17】同固体高分子型燃料電池を図 16 における X-X 線に沿って切断し矢印方向に見た断面図

【図 18】同固体高分子型燃料電池に組み込まれるセパレータの従来の製造方法を説明するための図

【図 19】(a) は同従来の方法で製造されたカソード側セパレータの平面図で、(b) は (a) における Y-Y 線切断矢視図

【符号の説明】

100…第 1 のシート

102…第 2 のシート

103…積層シート

104a、104b、201a、201b、221a、221b、244a、244b…金型

105、205、231…燃料ガス供給孔

106、206、232…燃料ガス排出孔

107、207、233…酸化剤ガス供給孔

108、208、234…酸化剤ガス排出孔

109、209、235…冷却水供給孔

110、210、236…冷却水排出孔

111、211、237、252…流路を構成する案内溝

112、212、238、312、412…カソード側セパレータ

200、220…シート

203…孔

204…リーク防止筒

240…段差

242、251…段差吸収シート

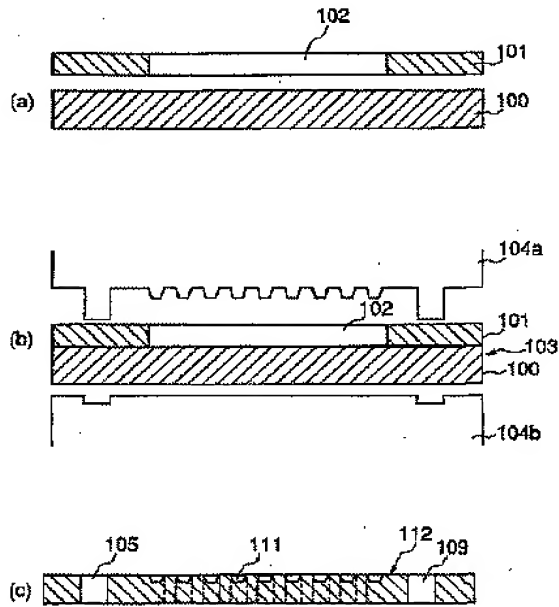
250…冷却用セパレータ

300…リーク防止薄膜層

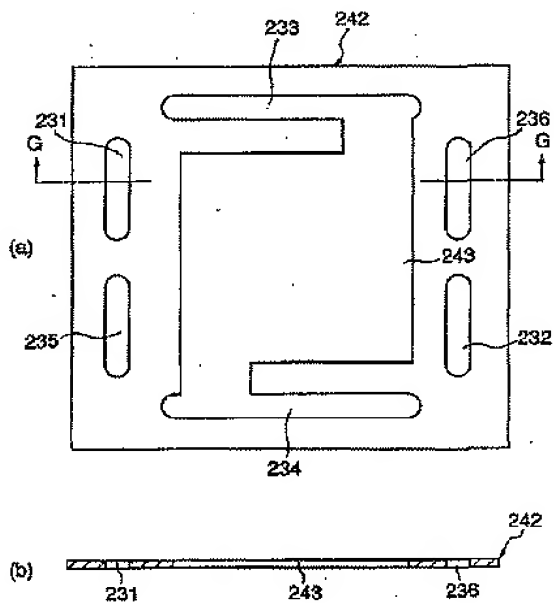
19

400…シール溝  
413…アノード側セパレータ  
414…冷却用セパレータ  
415…高分子電解質膜  
416…燃料極  
417…酸化剤極

【図1】



【図8】



(11)

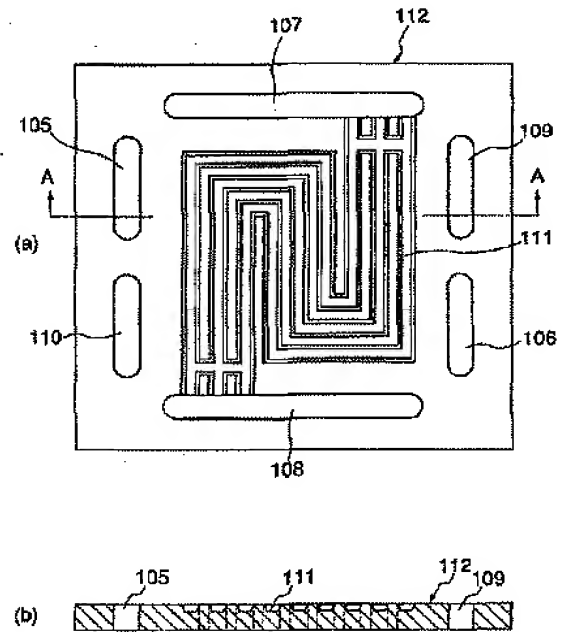
特開2000-21422

20

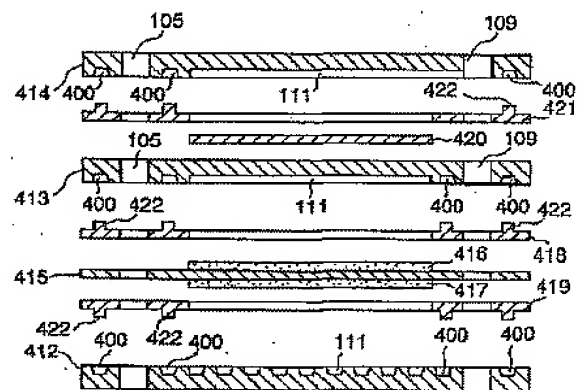
\* 418、419、421…パッキング  
420…加湿水透過板  
422…突起  
430a~430e…補強部材  
431…孔

\*

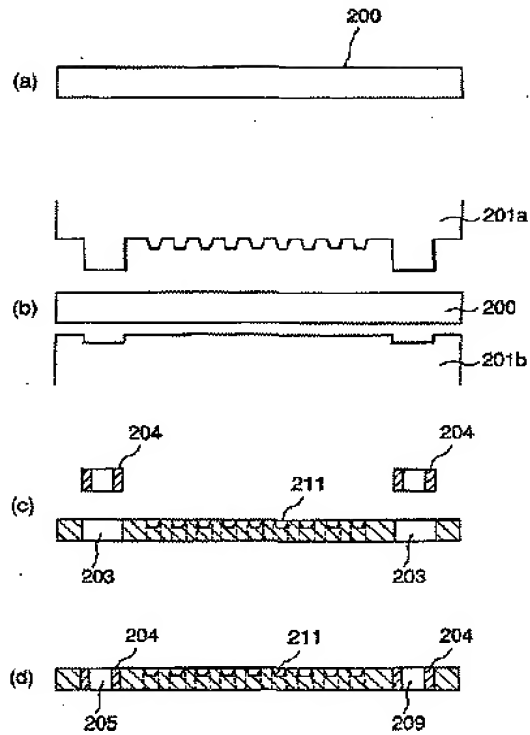
【図2】



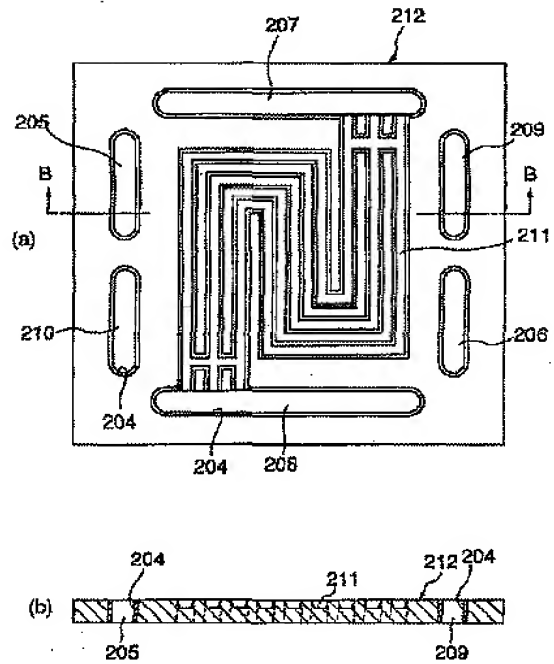
【図12】



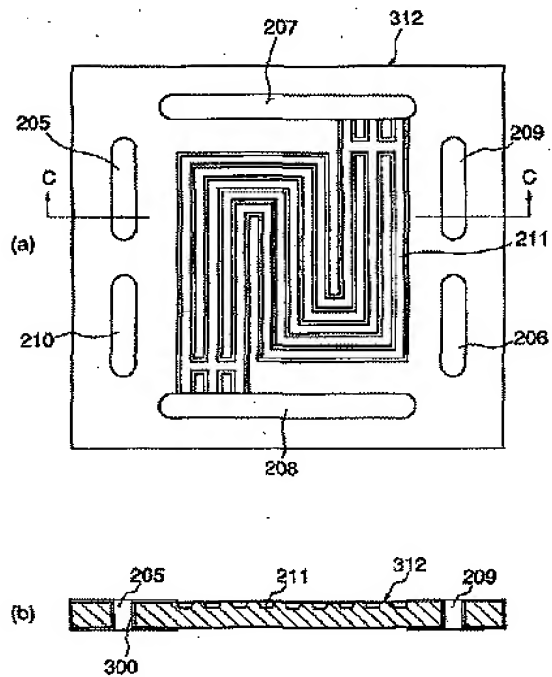
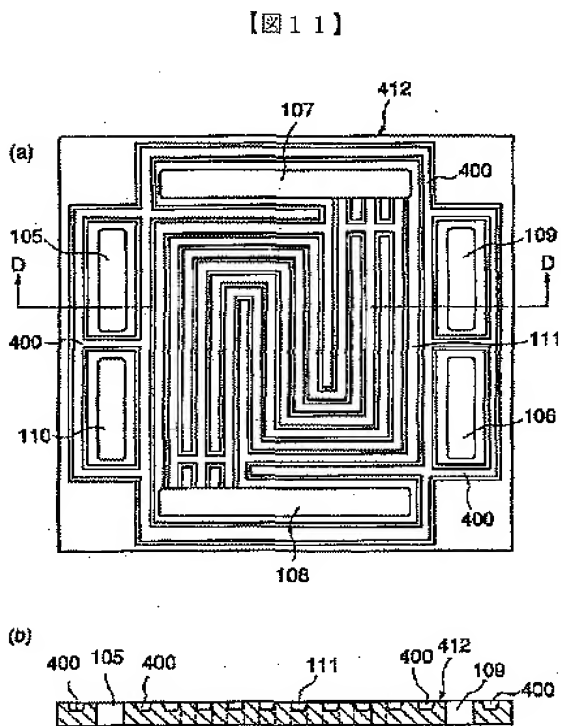
【図 3】



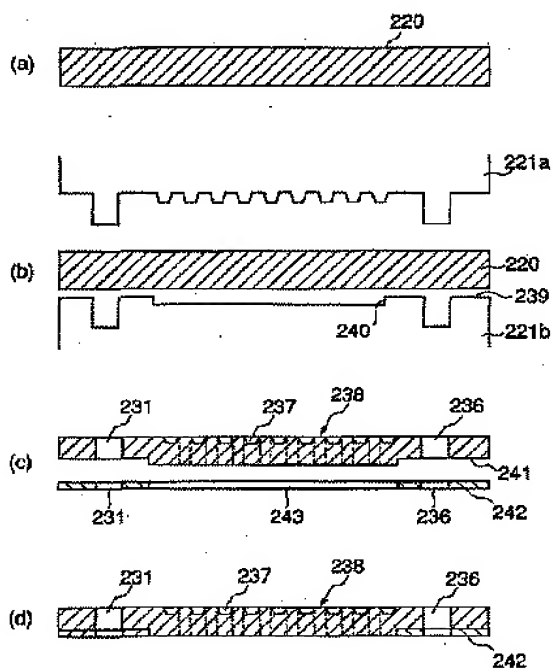
【図 4】



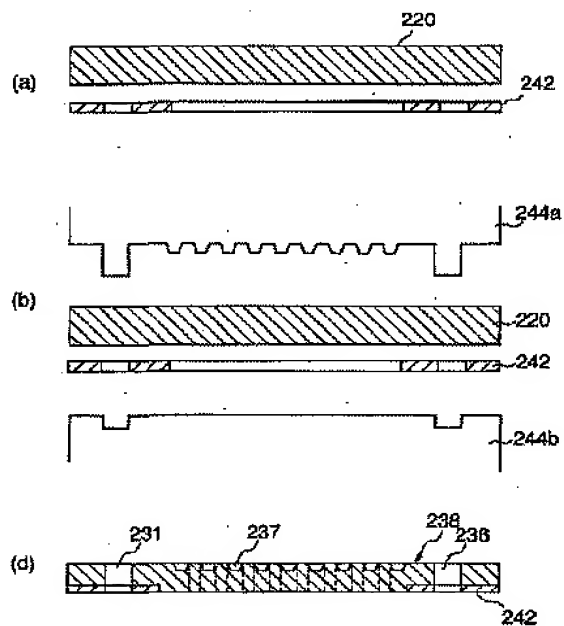
【図 5】



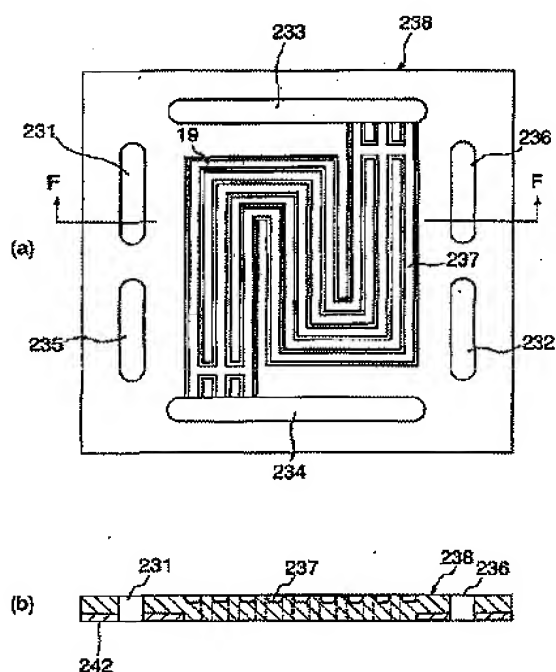
【図 6】



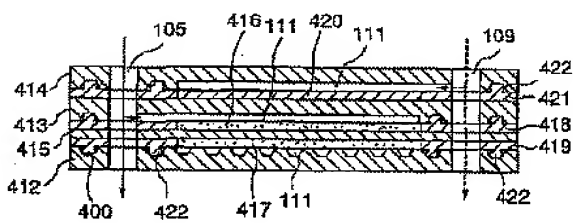
【図 9】



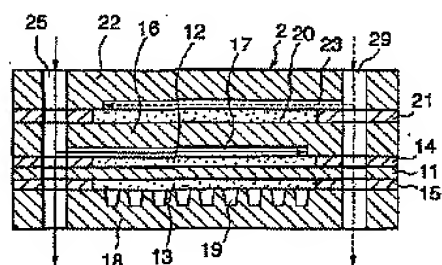
【図 7】



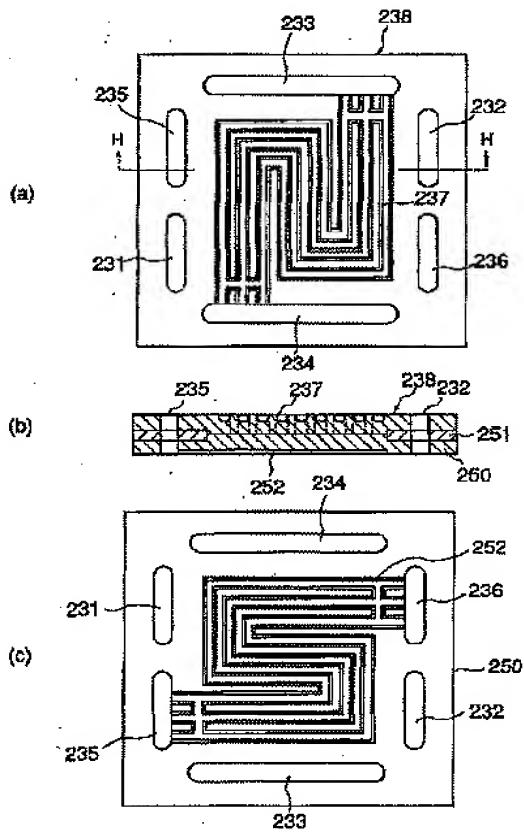
【図 13】



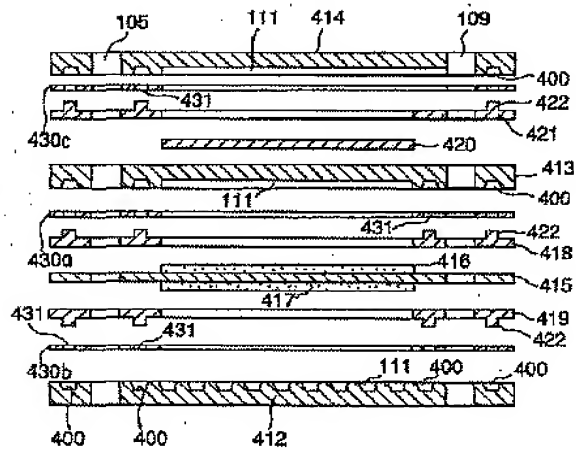
【図 17】



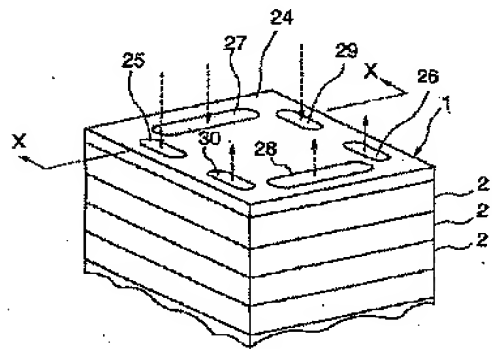
【図10】



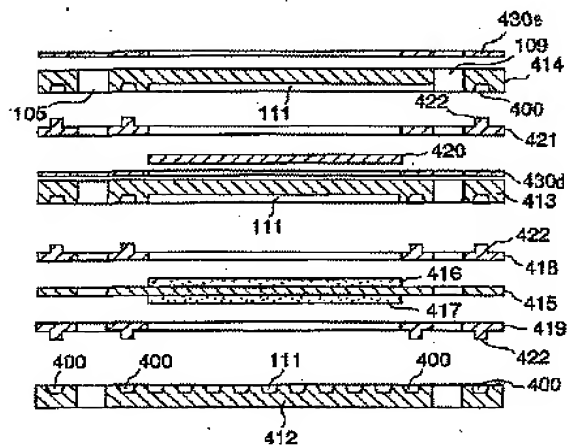
【図14】



【図16】

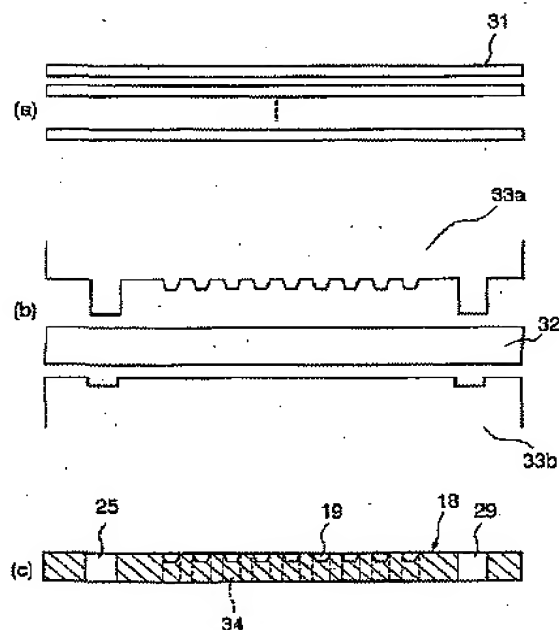


【図15】

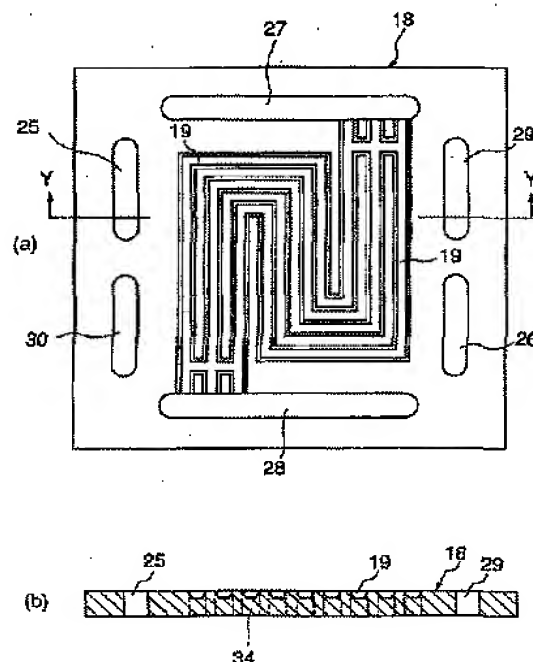




【図 18】



【図 19】



## 【手続補正書】

【提出日】平成 11 年 5 月 28 日（1999. 5. 28）

## 【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項 1

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【請求項 1】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートの少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路を有し、上記シートの周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔を有するセパレータを製造するに当たって、可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシートと、前記発電領域に対向する領域が除去された可撓性黒鉛シートからなる第 2 のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしたことを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0021】従来のセパレータの場合、原料の多孔質シートの嵩密度は約  $0.9 \text{ g/cm}^3$  とほぼ均一である。これを積層してなる積層シート 32 にプレス成形加工を施して形成されたセパレータ、例えば図 19 に示すカソード側セパレータ 18 では、案内溝 19 の形成されている部分の残肉部 34 の嵩密度が約  $1.6 \text{ g/cm}^3$  と高く、この残肉部 34 でのガス透過量は少ない。しかし、それ以外の部分は嵩密度が約  $1.0 \text{ g/cm}^3$  程度と小さく、ガス透過量が多い。

## 【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

## 【補正内容】

【0026】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項 1 に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、可撓性黒鉛シートの少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路を有し、上記シートの周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔を有するセパレータを製造するに当たって、可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシートと、前記発電領域に対向する領域が除去された

可撓性黒鉛シートからなる第2のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしている。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】一方、請求項5に係る発明では、セパレータ本体の少なくとも一方の面で流路及び貫通孔の周縁部に段差部分を設けている。この段差の形成に際して、流路及び貫通孔が設けられている部分に較べてその周縁部の肉厚が薄くなるように、つまり流路及び貫通孔が設けられている部分に較べてその周縁部のプレス変形量が多くなるようにプレス加工を施すことによって、上記周縁部の嵩密度を大きくできる。したがって、この場合も貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。なお、段差部分に段差吸収手段を添設しているので、段差の存在が燃料電池の積層構成に影響を与えることはない。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0046

【補正方法】変更

【補正内容】

【0046】このように、第1のシート100と発電領域に対向する領域が除去された第2のシート101とを積層し、この積層シート103にプレス成形加工を施して流路を構成する案内溝111及び該案内溝111への流体の供給・排出に供される孔105～110を備えた\*

\*セパレータを製造するようにしているので、第2のシート101を積層している分だけ周辺部、つまり燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水の供給・排出に供される孔105～110が設けられる部分の嵩密度を高くすることができる。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正内容】

【0048】効果を確認するために、燃料ガス供給孔105内にガス圧0.3MPaの窒素ガスを導入し、セパレータ左側面(図2)から漏れてくる窒素を水上置換により回収してリーク量を調べた。その結果、従来のセパレータでは、 $1\text{cc}/\text{min}/\text{cm}^2$ の窒素が検出されたが、この例に係る製造方法で製造されたセパレータでは検出量は零であった。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正内容】

【0049】このように、第1のシート100に予め発電領域と対向する領域を切り落とした第2のシート101を積層し、この積層シート103に対してプレス成形加工を施すことにより、燃料ガス供給孔105、燃料ガス排出孔106、酸化剤ガス供給孔107、酸化剤ガス排出孔108、冷却水供給孔109、冷却水排出孔110の周囲に嵩密度の高い部分を形成することができ、この結果、ガスリーク量を減らすことができる。

【手続補正書】

【提出日】平成11年10月1日(1999.10.1)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートでセパレータ本体が形成され、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路が形成され、上記セパレータ本体の周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔が形成されてなるセパレータ

を製造するに当たって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートからなる第1のシートと、この第1のシートと同じ構造で前記発電領域に対向する領域が除去された可撓性黒鉛シートからなる第2のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしたことを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項2】前記貫通孔の周囲を含む前記積層シートの周縁部にシール材装着用の溝を形成することを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項3】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、こ

のセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体を構成している可撓性黒鉛シートと同じ構造の可撓性黒鉛シートを筒状にして前記貫通孔の周壁内側に装着されたリーク防止筒とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、少なくとも前記貫通孔の周壁にコーティングされたリーク防止薄膜層とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部に形成された段差部分と、この段差部分に添設された段差吸収手段とを具備してなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】前記貫通孔の周囲を含む前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部にシール材装着用の溝を備えていることを特徴とする請求項 3、4、5 の何れか 1 項に記載の燃料電池用セパレータ。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】このようなことから、セパレータの形成材料として、一般にカーボン材を用いることが多い。また、最近では可撓性黒鉛からなる多孔質シートを金型成形加工することによってセパレータを製造する方法も提案されている。可撓性黒鉛シートは、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直交する方向には層状構造をなしており、特に加工性に優れている。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正内容】

【0022】このように、可撓性黒鉛シートで形成された従来のセパレータにあつては、加工性に優れている反面、特に気密性が要求されるガス・冷却水の供給・排出孔間および周囲とガス・冷却水の供給・排出孔との間において高い嵩密度が得られないので、ガス透過量、つまりガスリーク量が多いという問題があった。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

【補正内容】

【0026】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項 1 に係る発明は、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートでセパレータ本体が形成され、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に流体案内用の流路が形成され、上記セパレータ本体の周辺領域に上記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔が形成されてなるセパレータを製造するに当たって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシートと、この第 1 のシートと同じ構造で前記発電領域に対向する領域が除去された可撓性黒鉛シートからなる第 2 のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して前記流路、前記貫通孔を形成するとともに前記周辺領域の高嵩密度化を図るようにしている。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

【補正内容】

【0028】上記目的を達成するために、請求項 3 に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体を構成している可撓性黒鉛シートと同じ構造の可撓性黒鉛シートを筒状にして前記貫通孔の周壁内側に装着されたリーク防止筒とを具備してな

ることを特徴としている。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正内容】

【0029】上記目的を達成するために、請求項 4 に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、少なくとも前記貫通孔の周壁にコーティングされたリーク防止薄膜層とを具備してなることを特徴としている。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】上記目的を達成するために、請求項 5 に係る発明は、燃料電池に組み込まれるセパレータであって、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートで形成されたセパレータ本体と、このセパレータ本体の少なくとも一方の面で単位セルの発電領域に対向する領域に形成された流体案内用の流路と、前記セパレータ本体の周辺領域に貫通状態に形成されて前記流路への流体の供給及び排出に供される貫通孔と、前記セパレータ本体の少なくとも一方の面で前記流路及び前記貫通孔の周縁部に形成された段差部分と、この段差部分に添設された段差吸収手段とを具備してなることを特徴としている。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

【補正内容】

【0032】請求項 1 に係る発明では、前記構造の可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシートと、この第 1 のシートと同じ構造で発電領域に対向する領域が除去された可

撓性黒鉛シートからなる第 2 のシートとを積層し、この積層シートにプレス成形加工を施して流路及び該流路への流体の供給・排出に供される貫通孔を備えたセパレータを形成するようにしているので、プレス成形加工後のセパレータの厚みが従来のものと等しいとすると、第 2 のシートを積層している分だけ周辺部、つまり上記貫通孔の設けられる領域の高密度を高めることができる。このため、貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。同時に貫通孔の周辺部の嵩密度を高くできるので、この周辺部の機械的強度を増加させることができる。すなわち、可撓性黒鉛シートが本来的に備えている加工性に優れている点を損なうことなく、周辺部に配置される貫通孔の周壁を通してのガスリークを防ぐことができる。

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正内容】

【0049】このように、炭素の結晶がシートの平面方向に成長した構造をなし、かつ上記平面方向と直行する方向には層状構造をなす可撓性黒鉛シートからなる第 1 のシート 100 と、この第 1 のシート 100 と同じ構造で予め発電領域に対向する領域が除去された第 2 のシート 101 を積層し、この積層シート 103 に対してプレス成形加工を施すようにしているので、可撓性黒鉛シートが本来的に備えている加工性に優れている点を損なうことなく、燃料ガス供給孔 105、燃料ガス排出孔 106、酸化剤ガス供給孔 107、酸化剤ガス排出孔 108、冷却水供給孔 109、冷却水排出孔 110 の周囲に嵩密度の高い部分を形成することができ、この結果、ガスリーク量を減らすことができる。

【手続補正 10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0112

【補正方法】変更

【補正内容】

【0112】以上のように、本発明によれば、セパレータ形成材料として可撓性黒鉛シートを用い、この可撓性黒鉛シートが本来的に備えている加工性の良さを損なうことなく、しかもガスリークを抑制できる十分な気密性と十分な機械的強度性とを備えたセパレータを得ることができる。